FEB 2 3 2004
PATENT & TRADEMARK OFFICE

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

K-2133

Applicant : Yasuaki Maeda et al

Title : METHOD FOR PRODUCING FATTY ACID ALCOHOL ESTER

Serial No. : 10/678,116

Filed : October 6, 2003

Group Art Unit :

Examiner :

Hon. Commissioner of Patents
P.O. Box 1450, Alexandria, VA 22313-1450

February 23, 2004

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT

Sir:

Submitted herewith are certified copies of Japanese Patent Applications No. 2003-335154 filed on September 26, 2003 and No. 2002-300920 filed on October 15, 2002.

Priorities of the above applications are claimed under 35 USC 119.

KANESAKA AND TAKEUCHI

by Manabu Kanesaka
Manabu Kanesaka
Reg. No. 31,467
Agent for Applicants

1423 Powhatan Street
Alexandria, Virginia 22314
(703) 519-9785

Ser. 10/698,116

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: ２００３年 ９月２６日

出 願 番 号
Application Number: 特願２００３－３３５１５４

[ST. 10/C]: [ＪＰ２００３－３３５１５４]

出 願 人
Applicant(s): コスモエンジニアリング株式会社

２００３年１０月 ９日

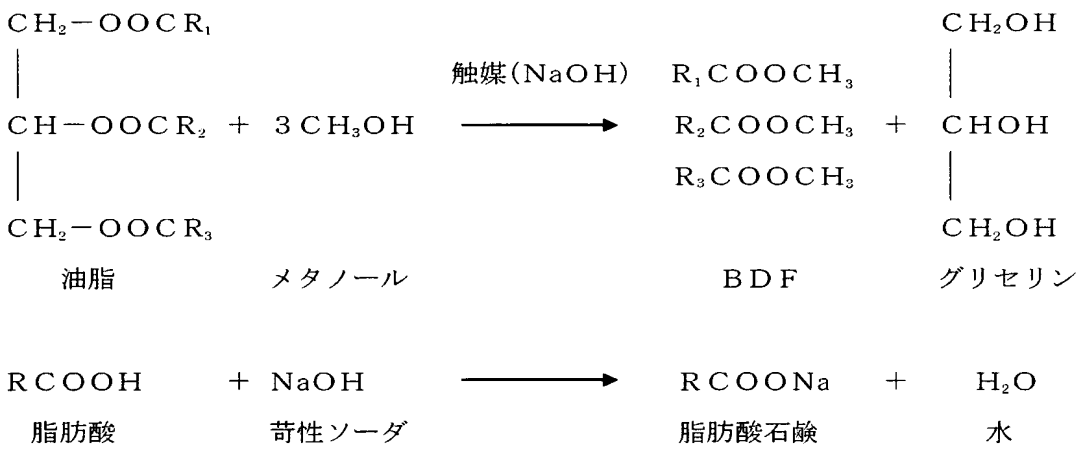
特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office 今井康夫

出証番号 出証特２００３－３０８３３５６

【書類名】　特許願
【整理番号】　PCE15001
【提出日】　平成15年 9月26日
【あて先】　特許庁長官　殿
【国際特許分類】　C10L　1/00
【発明者】
　【住所又は居所】　大阪府堺市学園町１－１　大阪府立大学内
　【氏名】　前田　泰昭
【発明者】
　【住所又は居所】　大阪府堺市学園町１－１　大阪府立大学内
　【氏名】　ミルチア　ビナトール
【発明者】
　【住所又は居所】　大阪府堺市学園町１－１　大阪府立大学内
　【氏名】　カルメン　ユージェニア　スタバラケ
【発明者】
　【住所又は居所】　東京都品川区東品川２－５－８　コスモエンジニアリング株式会社内
　【氏名】　岩井　邦夫
【発明者】
　【住所又は居所】　東京都品川区東品川２－５－８　コスモエンジニアリング株式会社内
　【氏名】　大重　英樹
【特許出願人】
　【識別番号】　591027237
　【氏名又は名称】　コスモエンジニアリング株式会社
【代理人】
　【識別番号】　100094488
　【弁理士】
　【氏名又は名称】　平石　利子
【先の出願に基づく優先権主張】
　【出願番号】　特願2002-300920
　【出願日】　平成14年10月15日
【手数料の表示】
　【予納台帳番号】　040512
　【納付金額】　21,000円
【提出物件の目録】
　【物件名】　特許請求の範囲　1
　【物件名】　明細書　1
　【物件名】　図面　1
　【物件名】　要約書　1

【書類名】特許請求の範囲
【請求項１】
油脂とアルコールを、触媒の存在下、超音波を周波数１５～１００ｋＨｚ、照射強度０．５～２０Ｗ／ｃｍ^{2}で照射してエステル交換反応を行うことを特徴とする脂肪酸アルコールエステルの製造方法。
【請求項２】
生成物に、超音波を周波数２００～３，０００ｋＨｚ、照射強度０．５～２０Ｗ／ｃｍ^{2}で照射して、脂肪酸アルコールエステルとグリセリンを分離することを特徴とする請求項１記載の脂肪酸アルコールエステルの製造方法。
【請求項３】
超音波を、脂肪酸アルコールエステルとグリセリンの界面に対して照射することを特徴とする請求項２に記載の脂肪酸アルコールエステルの製造方法。
【請求項４】
アルコールの使用量が、油脂に対する量論比の１～１．３倍であることを特徴とする請求項１～３の何れかに記載の脂肪酸アルコールエステルの製造方法。
【請求項５】
触媒の使用量が、油脂の０．２～１．５ｗｔ％であることを特徴とする請求項１～４の何れかに記載の脂肪酸アルコールエステルの製造方法。
【請求項６】
油脂が、菜種油、大豆油、オリーブ油、ヤシ油、パーム油、動物油、魚油、これらの廃油の少なくとも１種であることを特徴とする請求項１～５のいずれかに記載の脂肪酸アルコールエステルの製造方法。
【請求項７】
アルコールが、メタノールおよび／またはエタノールであることを特徴とする請求項１～６のいずれかに記載の脂肪酸アルコールエステルの製造方法。
【請求項８】
触媒が、苛性ソーダおよび／または苛性カリであることを特徴とする請求項１～７の何れかに記載の脂肪酸アルコールエステルの製造方法。

【書類名】明細書
【発明の名称】脂肪酸アルコールエステルの製造方法
【技術分野】
【０００１】
本発明は、軽油代替燃料として使用することができる脂肪酸アルコールエステルの製造方法に関し、特に、脂肪酸アルコールエステルの製造に伴い、副生するグリセリンをも高い利用価値を持って得ることができる脂肪酸アルコールエステルの製造方法に関する。
【背景技術】
【０００２】
植物油は、軽油ほど着火性がよくなく、また流動点も高いので、そのままでは軽油代替品としてディーゼル車の燃料には適さない。
一方、植物油を原料とし、アルコールとの反応で得られる脂肪酸アルコールエステルは、バイオディーゼル燃料油（ＢＤＦ）として、炭酸ガスを増やさない地球温暖化対策の観点から有力視されている。
【０００３】
すなわち、植物油とアルコールとを触媒の存在下で混合させると、エステル交換反応が起こり、植物油の殆どが脂肪酸アルコールエステルに変わり、副生物としてグリセリンと脂肪酸石鹸ができる（特開２０００－１４３５８６号公報、特表２００１－５２４５５３号公報参照、米国ＮＢＢ（Ｎａｔｉｏｎａｌ　Ｂｉｏｄｉｅｓｅｌ　Ｂｏｒｄ）パンフレット“Ｂｉｏｄｉｅｓｅｌ　Ｐｒｏｄｕｃｔｉｏｎ　ａｎｄ　Ｑｕａｌｉｔｙ”（２００２））。
例えば、化１に示すように、脂肪酸アルコールエステルとグリセリンが生成する主反応と、脂肪酸石鹸と水が生成する副反応が起こる。
【０００４】
【化１】



【０００５】
この脂肪酸アルコールエステルは、着火性（セタン価）や流動点が軽油に近似しており、軽油代替品としてディーゼル車の燃料油に十分使用できる。
【０００６】
しかし、このエステル交換反応は緩慢であり、常温では反応が完結するまで数時間掛かり、反応装置が大きくなるため、通常は反応温度を上げて反応を促進させているが、大きな熱エネルギーを必要とする。
また、反応温度を上げると、反応速度は上がるが、メタノールなど揮発性のアルコールを使用するため、常圧で反応させるためには、５０～６０℃程度までの昇温が限界である。
更に、反応装置に撹拌機を設置したり、ラインミキサーを設置するなどして、撹拌効果を上げる工夫をしているが、反応時間は３０分～１時間程度かかる。

これらの他にも、反応を促進させるためには、アルコールや触媒を過剰に加える手法もあるが、この手法では、精製工程において、生成物のエステルから、未反応のアルコール、余剰の触媒、あるいは過剰に生成した脂肪酸石鹸を取り除く必要があり、精製設備の大型化や複雑化、ならびに設備費やランニングコストのアップに繋がることとなる。

【０００７】

このように、従来の脂肪酸アルコールエステルの製造技術では、副原料のアルコールや触媒を過剰に入れることから製品であるエステルやグリセリンの純度が下がり、ＢＤＦとしての燃焼性や排ガス組成に悪影響を及ぼし、実用化の障害になっている。しかも、製品を精製するに際して、従来の精製技術をそのまま採用すれば、多大のコストが掛かってしまう。

このような実情下において、脂肪酸アルコールエステルを軽油代替燃料として普及させるためには、大幅なコストダウンが可能な製造・精製技術の開発が望まれている。

【特許文献１】特開２０００－１４３５８６号公報

【特許文献２】特表２００１－５２４５５３号公報

【非特許文献１】米国ＮＢＢ（Ｎａｔｉｏｎａｌ　Ｂｉｏｄｉｅｓｅｌ　Ｂｏｒｄ）パンフレット“Ｂｉｏｄｉｅｓｅｌ　Ｐｒｏｄｕｃｔｉｏｎ　ａｎｄ　Ｑｕａｌｉｔｙ”（２００２）

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【０００８】

本発明は、軽油代替燃料として脂肪酸アルコールエステルの製造・精製方法を、大幅なコストダウンが可能な技術により提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【０００９】

本発明者らは、上記課題を解決するために検討を重ねる途上で、特表２００１－５２４５５３号公報に記載の、エステル交換反応の促進および反応効率を上げるため、反応装置内部で混合物の界面を反応領域において強力な動的乱流によって拡大し、乳化させることで反応を促進するスタティックミキサーの導入などに着目した。しかし、この公報に開示の技術では、反応生成物、副産物および未反応物がエマルジョン化し、分離が困難などの新たな問題が生じるとの知見を得た。

また、特開２０００－１４３５８６号公報に記載の、反応促進や反応効率向上のため、超臨界や亜臨界状態にする方法にも着目したが、この方法ではコストが嵩み実用的ではないとの知見を得た。

更に、放射線やマイクロ波などの電磁波の照射にも着目したが、安全性の問題の他に、反応場が高温になる欠点があり、採用することには難がある。

【００１０】

以上の知見等に基づいて更に検討を重ねた結果、

（１）液体に特定の周波数の超音波を照射した際に粗密波の作用で液中にキャビテーションが生じることによる物質移動の促進効果と、生成キャビテーション中の局所的な高温・高圧による反応促進効果とを利用すれば、触媒の存在下において植物油とアルコールを原料としたエステル交換反応の速度を著しく増大させることができること、

（２）このエステル交換反応で生成する脂肪酸アルコールエステルとグリセリンの混合物に対しても、特定の周波数の超音波がもつ相分離促進効果を利用すれば、脂肪酸アルコールエステルを高純度で、かつ速やかにグリセリンと分離することができること、

の知見を得た。

【００１１】

本発明は、上記の知見に基づくもので、油脂とアルコールを、触媒の存在下、超音波を周波数１５～１００ｋＨｚ、照射強度０．５～２０Ｗ／ｃｍ^{2}で照射してエステル交換反応を行うことを特徴とする脂肪酸アルコールエステルの製造方法を要旨とする。

また、本発明は、このエステル交換反応で生成する生成物に、超音波を周波数２００～

３，０００ｋＨｚ、照射強度０．５～２０Ｗ／ｃｍ^{2}で照射して、脂肪酸アルコールエステルとグリセリンを分離することをも特徴とする。

この分離に際しては、超音波照射を、エステルとグリセリンの界面に対して行うことが好ましい。

【００１２】

すなわち、本発明は、ソノケミストリー技術を利用するもので、反応速度が遅い複数の液体原料に特定周波数の超音波を照射することにより、液中反応を促進させ、また比重差の小さい液液分離を、特定周波数の超音波を照射することにより、促進させるものである。

【００１３】

本発明における原料油脂は、菜種油、大豆油、オリーブ油、ヤシ油、パーム油などの植物油の他に、動物油、魚油なども使用でき、またこれらの廃油をも使用することができる。

これらの油脂は、いずれかを単独で用いてもよいし、２種以上を混合して用いることもできる。

【００１４】

また、本発明における原料アルコールは、メタノー、エタノールのいずれか一方を単独で、あるいは両者を適宜の割合で混合して使用することができる。

原料アルコールの使用量は、少なすぎると、エステル交換反応の速度が低下するのみならず、充分な反応も生起しなくなり、逆に多すぎると、精製工程において、未反応アルコールの分離が困難となるため、本発明では、油脂に対する量論比の１～１．３倍、好ましくは１～１．２倍、より好ましくは１～１．１７倍とすることが適している。

前記した従来技術では、原料アルコールの使用量は、量論比より１．５倍以上もの大量を要しており、精製工程において問題があったのに対し、上記のような液中でのキャビテーションの生成をもたらす特定条件での超音波照射を行う本発明では、量論比であっても、また量論比の１．１７倍程度に過ぎない過剰量であっても、短時間で、充分な量のエステル交換反応を生起させることができる。

【００１５】

本発明における触媒は、苛性ソーダ、苛性カリのいずれか一方を単独で、あるいは両者を適宜の割合で混合して使用することができる。

触媒の使用量は、少なすぎると、エステル交換反応の速度が低下するのみならず、充分な反応が生起せず、逆に多すぎると、精製工程において触媒の分離が困難となるため、本発明では、油脂の０．２～１．５ｗｔ％とすることが好ましい。

前記した従来技術では、触媒の使用量は、油脂の量の２～３ｗｔ％もの大量を要しており、精製工程において問題があったのに対し、上記のような液中でのキャビテーションの生成をもたらす特定条件での超音波照射を行う本発明では、油脂の０．２～１．５ｗｔ％程度の少量であっても、短時間で、充分な量のエステル交換反応を生起させることができる。

【００１６】

上記の原料油脂に原料アルコールと触媒を加えた混合液に対して、本発明では、周波数１５～１００ｋＨｚ、好ましくは２０～４０ｋＨｚの超音波を、照射強度０．５～２０Ｗ／ｃｍ^{2}で照射する。

この条件での超音波の照射により、混合液中にキャビテーションが生じ、このキャビテーションにより物質（油脂とアルコールの）移動が促進されると共に、キャビテーション中に局所的な高温・高圧が発生して、反応が促進され、エステル交換反応の速度が顕著に高まる。

これにより、前記した従来技術ではエステル交換反応を完結するのに、常温の場合で５～１０時間、加温しても３０分～１時間もの長時間を要したのに対し、本発明では常温で１０～２０分程度の短時間で当該反応を完結することができる。

加えて、エステル交換反応が促進される結果、不純物として除去しなければならない脂

肪酸石鹸などの発生量を低く抑えることもできる。

【００１７】

なお、周波数１５ｋＨｚ未満、照射強度０．５Ｗ／ｃｍ^{2}未満の超音波照射では、キャビテーションによる物質移動や反応促進効果を十分でなく、逆に周波数が１００ｋＨｚを超え、照射強度が２０Ｗ／ｃｍ^{2}を超える超音波照射を行うと、消費電力が増加するのみならず、キャビテーションによる物質移動促進効果が低下して却って反応速度が低下してしまう。

【００１８】

上記条件での超音波照射に際して、加熱は要せず、常温、常圧でよく、また撹拌機などによる撹拌・混合も必ずしも要しない。

超音波照射は、反応装置の側面、底面、天面、あるいは内部の中心部等のいずれかかから、あるいはこれらの全てから行うことができるが、側面や底面から行うのが好ましく、また超音波照射手段（超音波振動子）は側面や底面等夫々の１箇所に配置してもよいし、複数カ所に均一に分散させて配置することもできる。

【００１９】

また、上記のエステル交換反応は、流通式の反応装置を用いて連続式で行ってもよいし、バッチ式の反応装置を用いてバッチ式で行ってもよい。

【００２０】

上記のようにしてエステル交換反応を行うと、脂肪酸アルコールエステルとグリセリンと脂肪酸石鹸が生成し、これに未反応原料や触媒が混在する生成物が得られる。

本発明では、この生成物に、超音波を周波数２００～３，０００ｋＨｚ、照射強度０．５～２０Ｗ／ｃｍ^{2}で照射する。すると、脂肪酸アルコールエステルが高純度で、グリセリンから速やかに分離される。

【００２１】

上記の分離精製に際して照射する超音波は、周波数が２００ｋＨｚ未満では、分離ではなく混合が生じて却って分離精製効率が低下し、周波数が３，０００ｋＨｚを超えても、超音波照射効果は飽和し、照射強度が０．５Ｗ／ｃｍ^{2}未満では、液滴凝集の促進効果が不十分となり、照射強度が２０Ｗ／ｃｍ^{2}を超えると、分離ではなく混合が生じて却って分離精製効率が低下してしまう。

【００２２】

また、上記の超音波照射は、脂肪酸アルコールエステルとグリセリンの界面に対して行うと、液液界面近傍における脂肪酸アルコールエステルやグリセリンの液滴の凝集を促進し、分離効率を一層向上させることができる。

【００２３】

なお、脂肪酸アルコールエステルは、高純度で分離できるため、これを水などを用いて洗浄するのみで、微量な残存アルコール、触媒、脂肪酸石鹸微粒子が除去され、製品エステルとして取り出される。

一方、グリセリン側には、脂肪酸石鹸が移行しているため、次工程において、中和、脂肪酸石鹸の塩析除去、蒸留、不純物の吸着除去、再蒸留するなどして、高純度の製品グリセリンとして取り出される。

【発明の効果】

【００２４】

本発明の方法によれば、常温・常圧で、しかも撹拌機などによる撹拌・混合をしなくとも、短時間の反応で、バイオディーゼル燃料油としての脂肪酸アルコールエステルを、高効率で製造することができる。

そして、反応効率の向上により、副原料であるアルコールの使用量と、触媒の使用量を最小限に抑えることができるばかりでなく、不純物として除去しなければならない脂肪酸石鹸などの発生量も抑えられる。

また、本発明の方法によれば、エステル交換反応で生成する脂肪酸アルコールエステルとグリセリンとの混合物から、常温・常圧で、しかも短時間で、脂肪酸アルコールエステ

ルを高純度で分離精製することができる。

【００２５】

更に、本発明で得られる不純物が殆どない脂肪酸アルコールエステルを、バイオディーゼル燃料油としてディーゼルエンジン車で使用すると、排ガス中の黒煙（スス）が軽油のおよそ１／３に低下し、ＰＭ（粒子状物質）にも発ガン性のあるベンツピレンが殆ど含まれず、ＮＯｘも軽油と比べると約７５％も少なくなる。

しかも、硫黄分の少ない植物油などの油脂を原料とするためＳＯｘも少なくなる。

従って、本発明の方法によれば、環境にやさしい軽油代替燃料を低コストで提供することができ、本発明は、地球温暖化対策に極めて有効な方法と言える。

【発明を実施するための最良の形態】

【００２６】

図面を参照して本発明の一実施態様例を説明する。

図１（Ａ）は、全工程を説明するためのフロー図であり、図中、１はエステル交換反応装置であって、この反応装置１にはラインＬ１を介して原料油脂が導入されており、このラインＬ１の途上にラインＬ２から原料アルコールが、ラインＬ３から触媒が混入されている。

反応装置１は、超音波式反応装置であり、図１の例では、装置１の底面に超音波振動子２が複数個（図１（Ａ）では便宜上２個のみを示してある）設置されており、これらの超音波振動子２は超音波発振機３（図１（Ａ）では１個のみを示してあるが、複数個であってもよい）に接続されている。

なお、超音波振動子２は、装置１の底面に限らず、側面に設置してもよいし、上記の原料混合液を装置１に隙間なく充満させる場合には天面に設置してもよいし、これらの全てに設置してもよく、また装置１の内面（内壁面）に設置しても外面（外壁面）に設置してもよい。

あるいは、超音波振動子２は、図１（Ｂ）に示すように、反応装置１の内部に該装置１と同軸に設置することもできる。

また、反応装置１は、直方体や円筒体に限らず、他の形態のものであってもよい。

【００２７】

上記の反応装置１において所定の条件での超音波照射によるエステル交換反応が終了したなら、反応終了後の混合液がラインＬ４から分離槽４に移送される。

分離槽４も、超音波式分離槽４であり、図１（Ａ）の例では、分離槽４の底面に超音波振動子２が複数個（図１では便宜上１個のみを示してある）設置されており、これらの超音波振動子２は超音波発振機３（図１（Ａ）では１個のみを示してあるが、複数個であってもよい）に接続されている。

超音波振動子２は、分離槽４の底面に限らず、側面や天面に設置してもよいし、これらの全てに設置してもよく、また分離槽４の内面（内壁面）に設置しても外面（外壁面）に設置してもよい。

あるいは、超音波振動子２は、図１（Ｃ）に示すように、分離槽４の内部に該分離槽４と同軸に設置することもできる。

また、この分離槽４は、直方体や円筒体に限らず、他の形態のものであってもよい。

【００２８】

分離槽４において所定の条件での超音波照射による分離操作が終了したなら、上層の脂肪酸アルコールエステルがラインＬ５から洗浄槽５に移送され、残存アルコールや触媒、あるいは脂肪酸石鹸の微細な粒子が水洗などにより除去された後、ラインＬ６から抜き出されて製品貯槽６に貯留され、軽油代替のバイオディーゼル燃料油（ＢＤＦ）として使用される。

【００２９】

一方、下層のグリセリンと脂肪酸石鹸の混合液は、ラインＬ７から抜き出され、図示は省略するが、グリセリンと脂肪酸石鹸との分離工程に移送され、例えば、中和後、塩の添加により脂肪酸石鹸が塩析除去された状態で製品グリセリンとされたり、あるいは脂肪酸

石鹸除去後のグリセリンを蒸留精製し、水で希釈して活性炭で不純物を除去し、再度蒸留精製して高純度の製品グリセリンとされる。

これらのグリセリンは、ＢＤＦ製造の副生物として、種々の分野において価値の高い利用がなされる。

【００３０】

図２は、図１の反応装置１に代えて、連続式の反応装置１を用いる場合を示しており、図１と同一符号は図１と同一機能部を示している。

図２の連続反応装置１は、液の流れ方向に沿って長い直方体、円筒体、断面多角形体などの形態のものであり、底面に複数個の超音波振動子２を設置したものである。なお、超音波振動子２は、図１の場合と同様に、底面に限らず、側面や天面に設置してもよいし、これらの全てに設置してもよく、また装置１の内面（内壁面）に設置しても外面（外壁面）に設置してもよい。

あるいは、図１（Ｂ）のように、連続反応装置１の内部に、該装置１と同軸に設置してもよい。

図２の場合における他の装置やラインは、図１と同様に構成することができる。

図２に示す態様によれば、本発明による脂肪酸アルコールエステルの製造を、連続して行うことができる。

【００３１】

図３は、図１の分離槽４における超音波振動子２の他の設置態様例を示しており、図３中、図１と同一符号は図１と同一機能部を示している。

図３の例では、超音波振動子２を分離層４の側面に設置する態様であって、しかも脂肪酸アルコールエステルとグリセリンの界面付近の側面に設置している。

なお、分離槽４が連続式であって、脂肪酸アルコールエステルとグリセリンの界面の位置をほぼ一定に制御（例えば、脂肪酸アルコールエステルの一部および／またはグリセリンの一部を抜き出すなどして制御）できる場合は、超音波振動子２の設置位置は固定式であってよいが、超音波振動子２を分離槽４の側面の高さ方向に自在にスライドできるようにして、この界面の位置に合わせて超音波振動子２をスライドする方式であってもよい。

〔実施例１，比較例１〕

【００３２】

図３に示す工程に沿って、市販の菜種油を原料油脂にし、アルコールとしてメタノールを、触媒として苛性ソーダを用い、表１に示す条件で、エステル交換反応を実施した。この結果を実施例１として表１に併せて示す。

比較のために、超音波照射を行わない従来の方法により、表１に示す条件で、エステル交換反応を実施した。この結果を比較例１として表１に併せて示す。

【００３３】

【表１】

	実施例１	比較例１
油脂	菜種油	同左
反応温度・圧力	常温・常圧	同左
超音波照射周波数	２８ｋＨｚ	なし
超音波照射強度	６Ｗ／ｃｍ^2	なし
反応時間	１５分	５～１０時間
反応時の攪拌	なし	あり
触媒量（対油脂）	０．５ｗｔ％	３．０ｗｔ％
アルコール量（対油脂）	１５ｗｔ％	２０ｗｔ％
分離温度・圧力	常温・常圧	同左
超音波照射周波数	６００ｋＨｚ	なし
超音波照射強度	６Ｗ／ｃｍ^2	なし
超音波照射時間	５分	なし
静置分離時間	１０分	５～１０時間
エステルの生成量＊１	９８ｗｔ％	９０ｗｔ％
グリセリン（層）の生成量＊１	１７ｗｔ％	３３ｗｔ％
（グリセリンの性状）	（比較的純度が高い）	（不純物が多い）
石鹸の生成量＊！	≦１ｗｔ％	２～３ｗｔ％

＊１：対油脂

〔実施例２～４〕

【００３４】

図３に示す工程に沿って、市販の菜種油を原料油脂にし、アルコールとしてメタノールを、触媒として苛性カリを用い、表２に示す条件で、エステル交換反応を実施した。この結果を実施例２、３、４として表２に併せて示す。

【００３５】

【表２】

	実施例２	実施例３	実施例４
油脂	菜種油	同左	同左
反応温度・圧力	常温・常圧	同左	同左
超音波照射周波数	４０ｋＨｚ	同左	同左
超音波照射強度	０．５Ｗ／ｃｍ^2	同左	同左
反応時間	３０分	同左	同左
反応時の攪拌	なし	同左	同左
触媒量（対油脂）	０．５ｗｔ％	同左	同左
アルコール量（対油脂）	２０ｗｔ％	同左	同左
分離温度・圧力	常温・常圧	同左	同左
超音波照射周波数	１５００ｋＨｚ	３８ｋＭｚ	なし
超音波照射強度	１０Ｗ／ｃｍ^2	同左	なし
超音波照射時間	１０秒	同左	なし
静置分離時間	２０分	３時間	同左
エステルの生成量＊１	９８ｗｔ％	同左	同左
グリセリン（層）の生成量＊１	２２ｗｔ％	同左	同左
石鹸の生成量＊！	≦１ｗｔ％	同左	同左

＊１：対油脂

【００３６】

実施例３において、分離時の超音波照射を、請求項２よりも低周波数で行った場合、分離ではなく、混合が生じていまい、実施例２と同等の分離精製結果を得るためには、静置分離時間を実施例２の２０分より９倍も長い３時間を要した。

また、実施例４において、分離精製を、超音波照射せずに、静置分離のみで行う場合も、実施例３の場合と同様に、３時間もの長時間を要した。

〔実施例５．６〕

【００３７】

図３に示す工程に沿って、市販のパーム油を原料油脂にし、アルコールとしてメタノールを、触媒として苛性カリを用い、表３に示す条件で、エステル交換反応を実施した。この結果を実施例５、６として表３に併せて示す。

【００３８】

【表３】

	実施例５	実施例６
油脂	パーマ油	同左
反応温度・圧力	５０℃・常圧	同左
超音波照射周波数	４０ｋＨｚ	同左
超音波照射強度	０．５Ｗ／ｃｍ^2	同左
反応時間	３０分	同左
反応時の攪拌	なし	同左
触媒量（対油脂）	０．５ｗｔ％	同左
アルコール量（対油脂）	２０ｗｔ％	同左
分離温度・圧力	常温・常圧	同左
超音波照射周波数	１５００ｋＨｚ	なし
超音波照射強度	１０Ｗ／ｃｍ^2	なし
超音波照射時間	５分	なし
静置分離時間	１時間	８時間
エステルの生成量＊１	９６ｗｔ％	同左
グリセリン（層）の生成量＊１	２４ｗｔ％	同左
石鹸の生成量＊！	≦１ｗｔ％	同左

＊１：対油脂

【００３９】

パーム油を原料油脂とする場合も、実施例６において、分離精製を、超音波照射せずに、静置分離のみで行った場合、実施例５と同等の分離精製結果を得るためには、分離精製時間を実施例５の１時間５分より７倍以上も長い８時間を要した。

〔実施例７〕

【００４０】

分離槽４における超音波振動子２の設置位置を、脂肪酸アルコールエステルとグリセリンの界面にした以外は、実施例１と同様にしてエステル交換反応を実施した。この結果を実施例７として表４に示す。

【００４１】

【表４】

	実施例７
油脂	菜種油
反応温度・圧力	常温・常圧
超音波照射周波数	２８ｋＨｚ
超音波照射強度	６Ｗ／ｃｍ^2
反応時間	１５分
反応時の攪拌	なし
触媒量（対油脂）	０．５ｗｔ％
アルコール量（対油脂）	１５ｗｔ％
分離温度・圧力	常温・常圧
超音波照射周波数	６００ｋＨｚ
超音波照射強度	６Ｗ／ｃｍ^2
超音波照射時間	３分
静置分離時間	３分
エステルの生成量＊１	９８ｗｔ％
グリセリン（層）の生成量＊１	１７ｗｔ％
石鹸の生成量＊！	≦１ｗｔ％

＊１：対油脂

【００４２】

分離槽４での超音波照射を脂肪酸アルコールエステルとグリセリンの界面に行うことにより、分離精製効率を一層向上させることができ、超音波照射時間、静置分離時間時間共に、実施例１の場合よりも短時間にして、実施例１と同等の効果を得ることができることが判る。

【産業上の利用可能性】

【００４３】

本発明は、軽油代替燃料として実用的に使用し得る脂肪酸アルコールエステルを高効率、高純度で、しかも低コストで製造する方法として有効に使用することができる。

また、本発明は、副生物であって、かつ高い利用価値を有しているグリセリンを、高効率、高純度で、しかも低コストで分離精製する方法として有効に使用することができる。

【図面の簡単な説明】

【００４４】

【図１】本発明の方法の一実施態様例を示し、（Ａ）が全工程を説明するためのフロー図で、（Ｂ）は反応装置１に設置する超音波振動子２の他の実施態様例を説明するための図、（Ｃ）は分離槽４に設置する超音波振動子２の他の実施態様例を説明するための図である。

【図２】図１に示す反応装置の他の実施態様例を示す図である。

【図３】本発明の方法の他の態様例の全工程を説明するためのフロー図である。

【符号の説明】

【００４５】

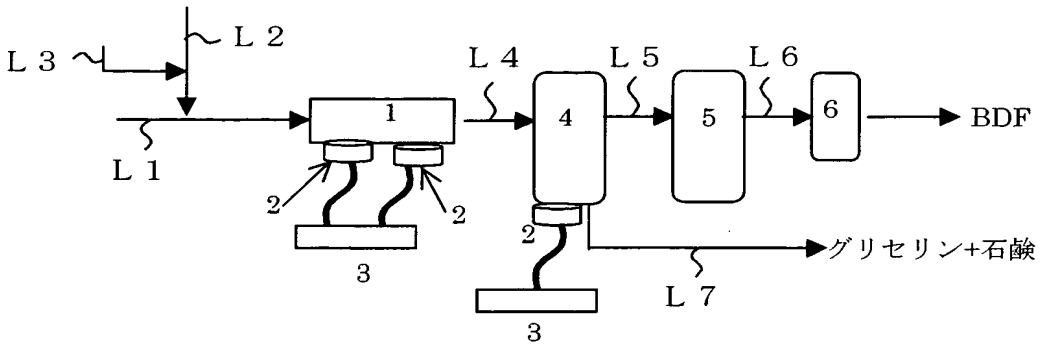
１　　反応装置

２　　超音波振動子

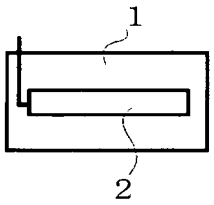
3　超音波発振機
4　分離槽
5　製品洗浄槽
6　製品貯槽

【書類名】図面
【図１】

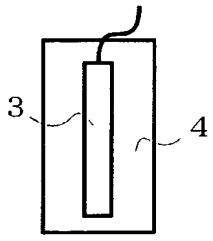
（A）



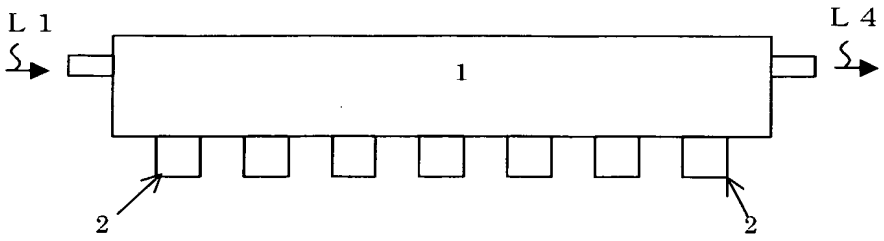
（B）



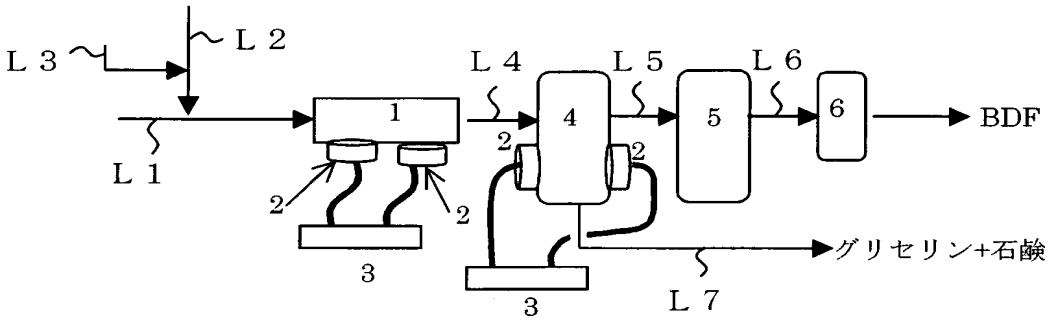
（C）



【図２】



【図３】



【書類名】要約書
【要約】
【課題】　軽油代替燃料として使用することができる脂肪酸アルコールエステルを製造する方法を提供する。
【解決手段】　油脂とアルコールを、触媒の存在下、反応装置１において、超音波を周波数１５～１００ｋＨｚ、照射強度０．５～２０Ｗ／ｃｍ^{2}で照射してエステル交換反応を行った後、分離槽４において、この反応の生成物に、超音波を周波数２００～３，０００ｋＨｚ、照射強度０．５～２０Ｗ／ｃｍ^{2}で照射して、脂肪酸アルコールエステルとグリセリンを分離する。
分離槽での超音波照射は、脂肪酸アルコールエステルとグリセリンの界面に対して行ってもよい。
【選択図】　図１

特願２００３－３３５１５４

出　願　人　履　歴　情　報

識別番号　　［５９１０２７２３７］

１．変更年月日　　１９９１年　１月１９日
［変更理由］　新規登録
住　所　　大阪府大阪市中央区島之内１丁目２０番１９号
氏　名　　コスモエンジニアリング株式会社

２．変更年月日　　２００２年　６月２１日
［変更理由］　住所変更
住　所　　東京都品川区東品川２丁目５番８号
氏　名　　コスモエンジニアリング株式会社